

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 29 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24654179

研究課題名(和文) 投影型同位体イメージングによる細粒CAIの鉱物アイソクロン

研究課題名(英文) Mineral isochron of fine grained CAI using stigmatic isotope imaging method

研究代表者

坂本 直哉 (Sakamoto, Naoya)

北海道大学・創成研究機構・助教

研究者番号：30466429

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,800,000円、(間接経費) 540,000円

研究成果の概要(和文)：細粒CAIの鉱物アイソクロンを求めるために必要な投影型二次イオン質量分析装置とイオンイメージセンサを用いた投影型同位体イメージングと高速なイオンイメージセンサの開発を行った。Mg存在度の大きく異なる複数鉱物を同一視野に含むMg同位体イメージの取得および150枚/秒でのイメージセンサの駆動に成功した。

研究成果の概要(英文)：Development of stigmatic isotope imaging method and new ion imager required in order to obtain a mineral isochron from fine-grained CAIs were carried out using stigmatic-type secondary ion mass spectrometry. Magnesium isotope images of fine-grained CAI were obtained and the read-out speed of the ion imager achieved 150 frames per seconds.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・地球宇宙化学

キーワード：同位体イメージング 細粒CAI 短寿命核種

1. 研究開始当初の背景

太陽系で最古の年代を示す岩石である隕石中の難揮発性包有物 (CAI) は、構成鉱物の結晶サイズにより粗粒 CAI と細粒 CAI に大別される。粗粒 CAI は短寿命核種 ^{26}Al を用いた年代測定が行われているが、細粒 CAI の報告は少ない。理由は、細粒 CAI を構成する鉱物のサイズと組成にある。細粒 CAI は、ミクロンオーダーのスピネル、ヒボナイト、メリライト、ディオプサイド、アノーサイトなどから構成され、複雑に入り組んだノジュールを形成している。そのため、プローブが異なる鉱物を噛むと見積もられる年代が大きく変動してしまう。また、各鉱物のサイズが小さいために変質を受けやすく、ネフェリンやソーダライトなどの二次変質鉱物が多く見られる。大部分の二次変質は ^{26}Al が消滅した後に起こるため、こちらも得られる年代に大きな影響を及ぼす。細粒 CAI は原始太陽系星雲ガスから直接凝縮して形成し、ある種の粗粒 CAI の前駆物質であったと考えられており、太陽系最初期における固体物質の形成時期を知る重要な手がかりであるが、上述の困難により年代学的データは非常に限定されていた。

2. 研究の目的

(1) 投影型 Al-Mg 同位体イメージング

細粒 CAI の年代学的データを得るには、高い空間分解能を持つ同位体分析が必要となる。点分析では、プローブを細く絞ると得られる信号強度も小さくなるため精度が出ない。一方で、投影型のイオン光学系を有する質量分析装置では、空間分解能がイオン光学系で決定されプローブ径に依存しないため、高空間分解能を保ったまま高精度分析が可能である。そこで本研究では、細粒 CAI に対して投影型 Al-Mg 同位体イメージング法の適用を試みた。

(2) 新イオンイメージセンサの開発

細粒 CAI のように Mg 含有量が大きく異なる物質が同一視野に存在する場合、検出器において信号が飽和しないようにプローブ強度が制限される。そこで、ダイナミックレンジの向上を目指し、新たなイオンイメージセンサの開発を行った。

3. 研究の方法

投影型同位体イメージングには、北海道大学に設置された投影型二次イオン質量分析装置 (Cameca ims-1270) とイオンイメージセンサ SCAPS を組み合わせた同位体顕微鏡システムを用いた。試料には、エフレモフカ隕石中の細粒 CAI を用いた。

イメージセンサの開発では、高速駆動が可能な設計で試作したセンサチップについて、ナショナルインスツルメンツ社の PXI モジュールを用いて制御システムの開発を行った。

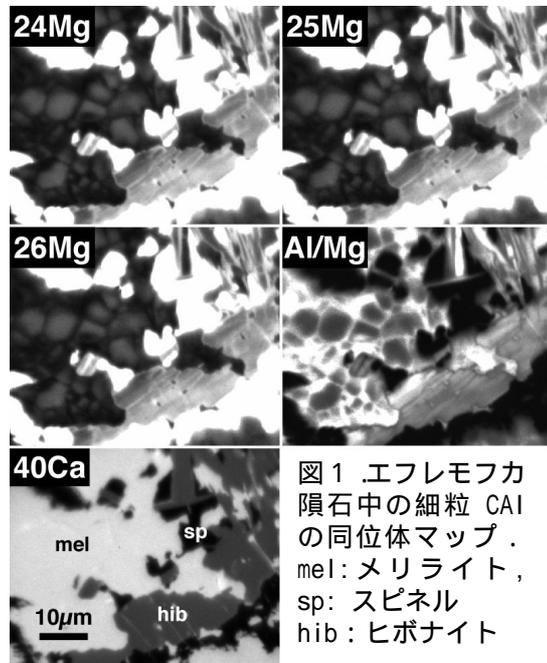


図1 エフレモフカ隕石中の細粒 CAI の同位体マップ。mel: メリライト, sp: スピネル, hib: ヒボナイト

4. 研究成果

図1に本研究で得られた細粒 CAI の同位体イメージの例を示す。Mg, Al 含有量が大きく異なるメリライト、スピネル、ヒボナイトを同一視野に含む 50 ミクロン四方の領域について ^{24}Mg , ^{25}Mg , ^{26}Mg , ^{27}Al , ^{40}Ca の同位体イメージを信号を飽和させずに取得する事に成功した。また、各鉱物間だけでなく同一鉱物内においても Mg, Al に大きなゾーニングが観察された。メリライトは、いずれも 10 ミクロン以下の結晶サイズであり、中心が Mg に富む逆累帯構造を持つ。短冊状のヒボナイトでは、粒界に存在するサブミクロンの Mg に富むレイヤーも確認できる。この時の ^{24}Mg の露光時間は 10 秒であり、通常観察に用いる X 線による元素マッピングと比較して、非常にコントラストが高く微細な構造を観察する事が出来た。これは、投影型同位体イメージングの感度が高いことと、試料最表面のみから信号を得ているために深さ方向でのぼけが少ないことに起因すると考えられる。

開発したイメージセンサの概略図を図2に示す。センサ内部に 12 ビット A/D コンバータを各カラムに内蔵しており、蓄積したイオン信号は LVDS 方式でデジタル信号として出力される LVDS レシーバモジュール (NI 6585) を経由して FPGA ボード (NI PXIe-7965R) に内蔵された DRAM へと転送され、FPGA 内で平均化などの信号処理を行う。さらに、高速化のために 500×500 個ある画素を 2 分割している。これらのシステムを制御するソフトウェアおよびハードウェアの開発を行い、150 枚/秒の速度でイメージの読み出しに成功した。これは現行の同位体顕微鏡システムで用いているセンサに比べ速度が 3 桁高速にイメージを読み出す事になっており、律速は PXI システムの制御コンピュータの速度であり、ソフトウェアの改良もしくはより高速

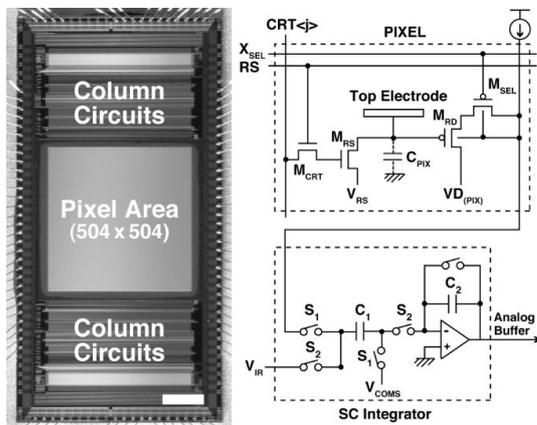


図 2. イメージセンサの写真と等価回路図

な CPU を用いる事で 300 枚/秒まで読み出し速度を向上させる事が可能と考えている。これにより、単位時間あたりのダイナミックレンジは 3 桁以上向上する。さらに、新たに追加した規定のイオン信号が蓄積したら自動的にその画素だけ独立に蓄積した信号をリセットする機能の動作チェックを行い。規定に達した回数はセンサ内部でカウントされる事を確認した。この機能は、面内存在度の不均一が大きい場合に、スピネルなど Mg のカウントが高い画素のみリセットする事が可能となり、新イオンイメージセンサを現行の投影型同位体イメージングシステムに組み込む事により、細粒 CAI の Al-Mg イメージング年代測定の実現が期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 11 件)

- (1) Kuga, Y., Sakamoto, N. and Yurimoto, H. (2014), Stable isotope cellular imaging reveals that both live and degenerating fungal pelotons transfer carbon and nitrogen to orchid protocorms. *New Phytologist*, 202: 594-605. DOI: 10.1111/nph.12700 (査読有)
- (2) Watanabe, T., Kouho, R., Katayose, T., Kitajima, N., Sakamoto, N., Yamaguchi, N., Shinano, T., Yurimoto, H. and Osaki, M. (2014), Arsenic alters uptake and distribution of sulphur in *Pteris vittata*. *Plant, Cell & Environment*, 37: 45-53. DOI: 10.1111/pce.12124 (査読有)
- (3) Zhang, A., Itoh, S., Sakamoto, N., Wang, R., Yurimoto, H. (2014), Origins of Al-rich chondrules: Clues from a compound Al-rich chondrule in the Dar al Gani 978 carbonaceous chondrite. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 130: 78-92. DOI: 10.1016/j.gca.2013.12.026 (査読有)
- (4) Hashiguchi, M., Sakaguchi, I., Sakamoto, N., Yurimoto, H., Hishita, S., Ohashi, N. (2013), Ion implantation and diffusion of zinc in dense SnO₂ ceramics. *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 121: 1004-1007. DOI: 10.2109/jcersj2.121.1004 (査読有)
- (5) Sakaguchi, I., Sakamoto, N., Hashiguchi, M., Yurimoto, H., Hishita, S., Ohashi, N. (2013), Characterization of oxygen defect and zinc segregation in the dense tin dioxide ceramics added with zinc oxide. *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 121: 956-959. DOI: 10.2109/jcersj2.121.956 (査読有)
- (6) Hyodo, H., Furukawa, J., Sakamoto, N., Yurimoto, H., Satoh, S. and Iwai, H. (2013) Tissue Specific Localization of Pectin-Ca²⁺ Cross-linkages and Pectin Methyl-esterification during Fruit Ripening in Tomato (*Solanum lycopersicum*). *PLoS One*, PONE-D-13-23131R1. DOI:10.1371/journal.pone.0078949 (査読有)
- (7) Hamasaki, T. Matsumoto, N. Sakamoto, N. Shimahara, S. Kato, A. Yoshitake, A. Utsunomiya, H. Yurimoto E., Gabazza and T. Ohgi (2013) Synthesis of 18O-labeled RNA for application to kinetic studies and imaging. *Nucl. Acids Res.*, 41(12):e126. DOI: 10.1093/nar/gkt344 (査読有)
- (8) Park C., Wakaki S., Sakamoto N., Kobayashi S. and Yurimoto H. (2012) Oxygen isotopic composition of the solar nebular gas inferred from high precision isotope imaging of melilite crystals in an Allende CAI. *Meteoritics & Planetary Science* 47, 12, 2070-2083. DOI: 10.1111/maps.12032 (査読有)
- (9) Kawasaki N., Sakamoto N. and Yurimoto H. (2012) Oxygen isotopic and chemical zoning of melilite crystals in a Type A Ca-Al-rich inclusion of Efremovka CV3 chondrite. *Meteoritics & Planetary Science* 47, 12, 2084-2093. DOI: 10.1111/maps.12033 (査読有)
- (10) Motai S., Nagai T., Watanabe T., Sakamoto N., Yurimoto H. and Kawano J. (2012) Needle-like grains across growth lines in the coral skeleton of *Porites lobata*. *Journal of Structural Biology* 180(3):389-93. DOI: 10.1016/j.jsb.2012.09.009 (査読有)
- (11) Sakamoto N., Aoyama S., Kawahito S. and Yurimoto H. (2012) Development of highly sensitive ion imager corresponding to real-time readout having single-ion detectability. *Japanese Journal of Applied Physics*, 51,

076701. DOI:10.1143/JJAP.51.076701(査読有)

〔学会発表〕(計 14 件)

- (1) Zhang, A.C., Ma, C., Sakamoto, N., Hsu, W.B., Wang, R.C. and Yurimoto, H. (2014) Mineralogy and oxygen isotope compositions of a Ti-Rich refractory inclusion from the CH chondrite SaU 290. 45th Lunar and Planetary Science Conference (March 17 - 21, 2014, The Woodlands, Texas, USA)
- (2) Greenwood, J. P., Itoh, S., Sakamoto, N., Yanai, K., Singer, J. A. and Yurimoto, H. (2014) Hydrogen isotopes of water in the moon: evidence for the giant impact model from melt inclusions and apatite in apollo rock samples. 45th Lunar and Planetary Science Conference (March 17 - 21, 2014, The Woodlands, Texas, USA)
- (3) Park, C., Sakamoto, N., Wakaki, S., Kobayashi, S. and Yurimoto, H. (2013) High precision oxygen isotope imaging of refractory minerals with isotope microscope system. The 19th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS-19) (September 29 - October 4, 2013, Jeju, Korea)
- (4) Kuga, Y., Sakamoto, N., and Yurimoto, H. (2013) Visualizing stable isotope tracers in plant-fungal symbiotic cells. The 19th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS-19) (September 29 - October 4, 2013, Jeju, Korea)
- (5) Ogasawara, K., Sakamoto, N., Higashiyama, T., Naito, S., Takano, J. and Yurimoto, H. (2013) Direct imaging of micronutrients in plant tissue using isotope microscope system. The 19th International Conference on Secondary Ion Mass Spectrometry (SIMS-19) (September 29 - October 4, 2013, Jeju, Korea)
- (6) Greenwood, J. P., Itoh, S., Sakamoto, N., Warren, P. H., Taylor, L. A. and Yurimoto, H. (2013) The Moon: Getting Wetter all the Time (A Survey of Apatite in Apollo 12 Basalts). 44th Lunar and Planetary Science Conference (March 18-22, 2013, The Woodlands, Texas, USA)
- (7) Zhang, A. C., Itoh, S., Sakamoto, N., Wang, R. C. and Yurimoto H. (2013) Heterogeneous Oxygen Isotopic Compositions in a Sapphirine-Bearing Al-Rich Chondrule from the DaG 978 Carbonaceous Chondrite. 44th Lunar and Planetary Science Conference (March

- 18-22, 2013, The Woodlands, Texas, USA)
- (8) Sakamoto, N. (2013) Principle of ion imager SCAPS and applications. Workshop: Cosmochemical Perspective on the Early Evolution of the Early Solar System (February 20-22, 2013, Sapporo, Japan)
- (9) J. Greenwood, S. Itoh, N. Sakamoto, P. Warren, L. Taylor, H. Yurimoto (2012) Water in the Moon: D/H and high volatile abundances of lunar apatite. The 22nd V. M. Goldschmidt Conference (June 24-29, 2012, Montreal, Canada)
- (10) G. Zellmer, N. Sakamoto, Y. Iizuka, M. Miyoshi, Y. Tamura, H. Yurimoto (2012) The role of water in the petrogenesis of arc magmas from SW Japan. The 22nd V. M. Goldschmidt Conference (June 24-29, 2012, Montreal, Canada)

〔図書〕(計 2 件)

- (1) Zellmer, G. F., Sakamoto, N., Iizuka, Y., Miyoshi, M. Tamura, Y. Hsieh, H. and Yurimoto, H. (2013) Crystal uptake into aphyric arc melts: insights from two-pyroxene pseudo-decompression paths, plagioclase hygrometry, and measurement of hydrogen in olivines from mafic volcanics of southwest Japan. In: Gomez-Tuena A., Straub S. M., Zellmer G. F. (eds) Orogenic and andesites and crustal growth. Geological Society, London, Special Publications. #OroAnd-350R3.
- (2) 坂本尚義, 坂本直哉 (2012) 隕石中に閉じ込められた太陽系形成当時の化石を同位体顕微鏡で探す. 顕微鏡 (日本顕微鏡学会誌) 47, 92-97.

〔その他〕

ホームページ等
北海道大学 宇宙化学研究室
<http://vigarano.ep.sci.hokudai.ac.jp/>

文部科学省：先端研究施設共用促進事業「安定同位体元素イメージング技術による産業イノベーション」
<http://iil.cris.hokudai.ac.jp/>

6. 研究組織

- (1) 研究代表者
坂本 直哉 (SAKAMOTO, NAOYA)
北海道大学・創成研究機構・助教
研究者番号：30466429
- (2) 研究分担者
該当なし
- (3) 連携研究者
該当なし